

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2002 年 11 月 7 日 (07.11.2002)

PCT

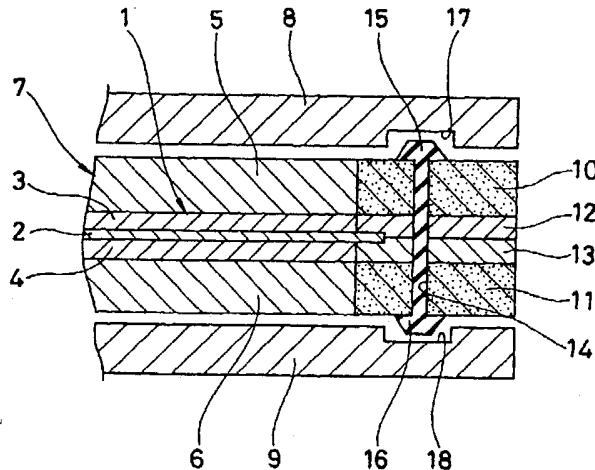
(10) 国際公開番号  
WO 02/089240 A1

- (51) 国際特許分類: H01M 8/04, 8/10 (JP). 株式会社東芝 (KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA) [JP/JP]; 〒105-8001 東京都港区芝浦一丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/04038
- (22) 国際出願日: 2002 年 4 月 23 日 (23.04.2002) (72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてののみ): 黒木 雄一 (KUROKI, Yuichi) [JP/JP]; 〒251-0042 神奈川県藤沢市辻堂新町4-3-1 エヌオーケー株式会社内 Kanagawa (JP). 蔵野 慶宏 (KURANO, Yoshihiro) [JP/JP]; 〒251-0042 神奈川県藤沢市辻堂新町4-3-1 エヌオーケー株式会社内 Kanagawa (JP). 井上 智広 (INOUE, Tomohiro) [JP/JP]; 〒251-0042 神奈川県藤沢市辻堂新町4-3-1 エヌオーケー株式会社内 Kanagawa (JP). 大間 敦史 (OMA, Atsushi) [JP/JP]; 〒232-0061 神奈川県横浜市南区大岡1丁目43-20 Kanagawa (JP). 小上 泰司 (OGAMI, Yasuji) [JP/JP]; 〒240-0044 神奈川県横浜市保土ヶ谷
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2001-124317 2001 年 4 月 23 日 (23.04.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): エヌオーケー株式会社 (NOK CORPORATION) [JP/JP]; 〒105-8585 東京都港区芝大門1丁目12番15号 Tokyo

/続葉有/

(54) Title: FUEL CELL AND METHOD OF MANUFACTURING THE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 燃料電池およびその製造方法



(57) Abstract: A fuel cell, comprising a membrane electrode composite formed by disposing catalyst layers on both surfaces of an electrolytic membrane to prevent a damage to the electrolytic membrane and facilitate the assembly process of the cell, first and second gas diffusion layers disposed on both surfaces of the membrane electrode composite, a separator for feeding reaction gas to the first and second gas diffusion layers, and gaskets for sealing the reaction gas, wherein the gaskets are formed on the surfaces of the gas diffusion layers opposedly to the separator, at least the gasket forming portions of the gas diffusion layers are low in porosity than the portions in contact with the catalyst layers, and the gaskets disposed on the first and second gas diffusion layers are formed integrally with each other through a through-hole commonly passing at least the first and second gas diffusion layers.

/続葉有/

## 明 細 書

## 燃料電池およびその製造方法

## 技術分野

本発明は、燃料電池およびその製造方法に関するものである。

## 背景技術

従来から、第21図に示すように、電解質膜51、触媒電極52、53、ガス拡散層54、55、セパレータ56、57およびガスケット58、59を図示したように組み合わせた燃料電池が知られている。これらの構成部品にあつて、電解質膜51は、その両面に配置される触媒電極52、53とともに膜電極複合体（反応電極部またはMEAとも称する）60を構成しており、この膜電極複合体60は、その両面に配置されるガス拡散層54、55とともにUEA61を構成している。また第22図に示すように、上記セパレータ56、57には所定の平面レイアウトをもってガス連絡溝62が設けられており、この部分についてはガスケット58または59に代えてスペーサ63が配置されている。その他の部分については、セパレータ56、57に固定したガスケット58、59が電解質膜51を挟み込むことによりシール性を確保している。

しかしながら、この従来技術では、上記したようにセパレータ56、57に固定したガスケット58、59が電解質膜51を挟み込むことによってシール性を確保しているために、ガスケット58、59近傍で電解質膜51が破れ易いと云う不都合がある。電解質膜51は電池の運転・停止による乾燥・湿潤の影響を受け易く、膜の収縮・膨張による大きなストレスを受けて短時間で破損する虞がある。また、上記従来技術では併せて、ガス連絡溝62の部分に剛性の高いスペーサ63を別途配置する必要があるために、電池の組立工程が繁雑であり、他の部分と電解質膜51との接触状態が異なることから電解質膜51が破れ易い構造

となっている。

更に上記従来技術では、電池の組立時に上記構成部品を順次組み付けるものであるために、この点からも組立工程が繁雑であると云う不都合がある。すなわち上記したように燃料電池は、その主な構成部品として、カーボンプレート等よりなるセパレータと、ガスを反応させるための膜電極複合体と、ガスの拡散を促進させるためのカーボン繊維等よりなるガス拡散層と、ガスや冷媒をシールするためのゴム状弾性材等よりなるガスケットとを有しているが、従来は、燃料電池の組立時にこれらの構成部品を順次組み付けているために、その組立てに多くの手間と時間がかかる不都合がある。これに対して近年、カーボンプレート上にガスケットを直接一体成形したセパレータとガスケットとの一体品が考案されているが（特開2000-133288号公報参照）、ガス連絡溝62の部分に剛性の高いスペーサ63を別途配置する構造は避けられず、よって電池組立工程が繁雑となり、セパレータとUEAとを交互に積する積層工程において、製造コスト低減を目的とした自動化が難しかった。

ガス拡散層は、カーボン繊維、金属繊維もしくは無機繊維等の繊維状物質の焼結体、織布または不織布からなり、ガス透過性が要求されるので連続通気性のある多孔質体である。したがって、剛性および強度が緻密構造体に比べて低く、加圧し過ぎると潰れて永久変形し易く、組立作業の上でハンドリング性が余り良くない。したがって、ガスケットを形成する際またはガスケットの形成後に膜電極複合体やセパレータ等と組み立てる際の位置決めや一体化するための加圧によりガス拡散層の破損、潰れあるいは変形によりガスケット形状のバラツキとなり、ガスケットと対向する相手面との間のシールに必要な面圧力が不足または過剰となることが懸念される。更に、ガス拡散層は多孔質構造であるため、ガス拡散層の層方向のガスリークが懸念される。

本発明は以上の点に鑑みて、電解質膜が破損するのを有効に防止することができ、また燃料電池の組立工程を容易化することができ、かつ優れたシール性を発揮することが可能な燃料電池とその製造方法とを提供することを目的とする。

尚、本発明は水素などの気体燃料を使用する燃料電池の他、メタノールなどの液体燃料を直接使用する燃料電池（ダイレクトメタノール燃料電池）にも適用できる。

#### 発明の開示

上記目的を達成するため、本発明の請求の範囲第1項による燃料電池は、電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体と、該膜電極複合体の両面に配置した第一および第二のガス拡散層と、前記第一および第二のガス拡散層に反応ガスをそれぞれ供給するためのセパレータと、前記反応ガスをシールするためのガスケットとを備えてなる燃料電池において、ガスケットはセパレータと対峙してガス拡散層表面上に形成され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位は触媒層と接する部位と比較して気孔率が低く、第一および第二のガス拡散層に配置した前記ガスケットは少なくとも前記第一および第二のガス拡散層を共通に貫通する貫通孔を介して一体化したことを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第2項による燃料電池は、電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体と、該膜電極複合体の両面に配置した第一および第二のガス拡散層と、前記第一および第二のガス拡散層に反応ガスをそれぞれ供給するためのセパレータと、前記反応ガスをシールするためのガスケットとを備えてなる燃料電池において、ガスケットはセパレータと対峙してガス拡散層表面上に形成され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位は触媒層と接する部位と比較して気孔率が低く、第一および第二のガス拡散層に配置した前記ガスケットはそれぞれのガス拡散層に設けた貫通孔を介しそれらガス拡散層の背面に設けた絶縁スペーサに繋がっていることを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第3項による燃料電池は、電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体と、該膜電極複合体の両面に配置した第一および第二のガス拡散層と、前記第一および第二のガス拡散層に反応ガスをそれぞれ供給するためのセパレータと、前記反応ガスをシールするためのガスケットを備

えてなる燃料電池において、ガスケットはセパレータと対峙してガス拡散層表面上に形成され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位は触媒層と接する部位と比較して気孔率が低く、第一および第二のガス拡散層に配置した前記ガスケットは少なくとも前記第一および第二のガス拡散層の端部を覆い一体化したことを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第4項による燃料電池は、電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体と、該膜電極複合体の両面に配置した第一および第二のガス拡散層と、前記第一および第二のガス拡散層に反応ガスをそれぞれ供給するためのセパレータと、前記反応ガスをシールするためのガスケットを備えてなる燃料電池において、ガスケットはセパレータと対峙してガス拡散層表面上に形成され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位は触媒層と接する部位と比較して気孔率が低減されていることを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第5項による燃料電池ガスケット製造方法は、上記した請求の範囲第3項または第4項に記載した燃料電池のガスケット製造方法において、ガス拡散層の気孔率が低いガスケット形成部位に接着剤を塗布し、その上に予め所定形状に形成したガスケットを接合することを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第6項による燃料電池ガスケット製造方法は、上記した請求の範囲第3項または第4項に記載した燃料電池のガスケット製造方法において、ガス拡散層の気孔率が低いガスケット形成部位に接着剤を塗布し、その上に射出成形法、プリント法、ディスペンサ法、スプレー法または圧縮成形法の少なくとも何れかの方法によりガスケットを成形することを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第7項による燃料電池ガスケット製造方法は、上記した請求の範囲第3項または第4項に記載した燃料電池のガスケット製造方法において、ガス拡散層の気孔率が低いガスケット形成部位に、接着性ゴムを材料として射出成形法、プリント法、ディスペンサ法、スプレー法または圧縮成形法の

少なくとも何れかの方法によりガスケットを成形することを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 8 項による燃料電池ガスケット製造方法は、上記した請求の範囲第 3 項または第 4 項に記載した燃料電池のガスケット製造方法において、ガス拡散層の気孔率が低いガスケット形成部位の表面粗さを確保し、その上に射出成形法、プリント法、ディスペンサ法、スプレー法または圧縮成形法の少なくとも何れかの方法によりガスケットを成形することを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 9 項による燃料電池は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項の何れかに記載した燃料電池において、ガス拡散層のガスケット形成部位にゴム、樹脂、カーボン、無機材料の少なくとも何れかを含浸することにより、前記ガスケット形成部位の気孔率を低減したことを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 10 項による燃料電池は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項の何れかに記載した燃料電池において、ガス拡散層のガスケット形成部位のかさ密度を高くし、気孔率を低減したことを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 11 項による燃料電池は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項の何れかに記載した燃料電池において、ガス拡散層のガスケット形成部位に予めゴム、樹脂、カーボン、無機材料の少なくとも何れかを予め含浸し、膜電極複合体と第一および第二のガス拡散層を接着した後にゴム状弾性材からなるガスケットを形成したことを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 12 項による燃料電池用ガス拡散層は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項の何れかに記載した燃料電池に使用するガス拡散層において、ガス拡散層のガスケット形成部位にゴムまたは樹脂が含浸され、前記含浸部の一方の面にゴムまたは樹脂からなる絶縁スペーサが形成されていることを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 1 3 項による燃料電池用ガス拡散層は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項に記載した燃料電池に使用するガス拡散層において、ガス拡散層のガスケット形成部位にゴムまたは樹脂が含浸され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位にゴム状弾性材からなるガスケットが形成されていることを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 1 4 項による燃料電池ガスケット製造方法は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項の何れかに記載した燃料電池のガスケット製造方法において、少なくとも電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体の両面に第一および第二のガス拡散層を配置し接着した後に、ゴムまたは樹脂によりセパレータと対峙した前記ガス拡散層表面上へのガスケット形成およびガス拡散層のガスケット形成部位への含浸処理を同時に実施することを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 1 5 項による燃料電池は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項の何れかに記載した燃料電池において、セパレータと対峙して第一および第二のガス拡散層表面上にそれぞれガスケットが形成された部位では、前記ガスケットは膜電極複合体を挟んで対応する位置に設けられていることを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 1 6 項による燃料電池は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項の何れかに記載した燃料電池において、セパレータには少なくともガスケットを収める溝が形成され、前記溝は前記ガスケット高さより浅く、その断面積は前記ガスケットの断面積より大きいことを特徴とするものである。

また、本発明の請求の範囲第 1 7 項による燃料電池は、上記した請求の範囲第 1 項ないし第 4 項の何れかに記載した燃料電池において、電解質膜の外寸法はガス拡散層の外寸法よりも小さく、前記電解質膜は前記ガス拡散層の面内部に配置されていることを特徴とするものである。

上記構成を備えた本発明の請求の範囲第 1 項による燃料電池によれば、セパレータと対峙して第一および第二のガス拡散層表面上にそれぞれ形成したガスケット

トを膜電極複合体を挟んで対応する位置に容易に形成することが可能となる。また、ガスケットを第一および第二のガス拡散層を共通に貫通する貫通孔を介して一体化して形成することができるために、1工程で両面のガスケットを形成することが可能となる。また、ガスケットを第一および第二のガス拡散層を共通に貫通する貫通孔を介して一体化したことによりガスケットをガス拡散層に確実に固定することができるために、ガスケットがガス拡散層より外れたり位置ずれしたりするのを防止することが可能となる。また、ガスケット形成部のUEAの厚さに関係なくガスケットの高さを任意に設定することが可能となる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第2項による燃料電池によれば、ガスケットと絶縁スペーサとを一体化形成するとともにガスケット材料含浸部もこれを一体化成形することが可能となる。また、第一または第二のガス拡散層に設けた貫通孔を介してガスケットと絶縁スペーサとが繋がっていることによりガスケットおよび絶縁スペーサをガス拡散層に確実に固定することができるため、ガスケットがガス拡散層より外れたり位置ずれしたりするのを防止することが可能となる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第3項による燃料電池によれば、セパレータと対峙して第一および第二のガス拡散層表面上にそれぞれ形成したガスケットを膜電極複合体を挟んで対応する位置に容易に形成できる。また、ガスケットを第一および第二のガス拡散層の端部を覆い一体化して形成したために、1工程で両面のガスケットを形成することが可能となり、併せてガスケットをUEA端部でコの字に形成することが可能となり、UEA端部の絶縁を確保することができるとともに、ガス拡散層端部、ガス拡散層と絶縁スペーサ界面または絶縁スペーサ界面からの反応ガスリークを確実に防止することが可能となる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第4項による燃料電池によれば、予めUEAを一体化した後にガスケットを形成することにより、セパレータと対峙して第一および第二のガス拡散層表面上にそれぞれ形成したガスケットを、膜電極複合体を挟んで対応する位置に容易に形成することが可能となる。また、ガ



スケットをUEA一体化後に形成するために、1工程で両面のガスケットを形成することが可能となる。また、UEA一体化前に、予めガスケット形成部へのガスケット材料含浸とガスケット形成を同時に実施することによりガスケットをガス拡散層に固定することが可能となる。

また、上記請求の範囲第3項または第4項における作用に加えて、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第5項による製造方法によれば、ガスケット形成部位に接着剤を塗布することにより、ガスケットをガス拡散層に固定することが可能となる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第6項による製造方法によれば、上記した請求の範囲第5項と同等の作用に加え、ガスケット形成部位に接着剤を塗布することにより、ガスケットをガス拡散層に固定することが可能となる。更に本形成方法であれば、短時間で多量の処理が可能になる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第7項による製造方法によれば、接着性ゴム材料を使用することにより、上記した請求の範囲第6項と同等の作用を奏する。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第8項による製造方法によれば、ガス拡散層の表面粗さを確保し、これにガスケットを形成することにより、上記した請求の範囲第6項と同等の作用を奏する。

また、上記請求の範囲第1項ないし第4項の何れかにおける作用に加えて、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第9項による燃料電池によれば、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用に加え、ガス拡散層の気孔にフィラーとして記載の材料を含浸することにより、気孔率を容易に低減することが可能となる。前記フィラーは、ガス拡散層を形成する材料と同種あるいは異種であっても良い。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第10項による燃料電池によれば、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用に加え、かさ密度を高くすることにより、気孔率を低減することが可能となる。尚、この請求の範囲第1

0項では、ガス拡散層を製造するときにガスケット形成部位の目付量を増やしたり、ガスケット形成部位を圧縮したりすることにより気孔率を低減する。後者のガスケット形成部位を圧縮することにより気孔率を低減する場合には、目付量は同じでもガスケット形成部位のみが過剰に圧縮されるために、この部分の空隙量が少なく、この部分のみが他の部分よりも薄く成形される。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第11項による燃料電池によれば、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用に加え、ガス拡散層に含浸する材料とガスケット材料とを異種とした場合には、それぞれの処理に最適な材料を選択することが可能となる。また、ガス拡散層に本項記載のフィラーを含浸することによって含浸部の剛性ないし強度を高くすることが可能であり、またガス拡散層のカーボン繊維の固定を容易化することが可能となる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第12項によるガス拡散層によれば、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用に加え、ガス拡散層に本項記載のフィラーを含浸することによって含浸部の剛性ないし強度を高くすることが可能であり、またガス拡散層のカーボン繊維を固定化することが可能となる。また、絶縁スペーサがガス拡散層に固定されているために、UEAの一体化接着を容易化することが可能となる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第13項によるガス拡散層によれば、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用を奏することが可能となる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第14項による製造方法によれば、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用に加え、ガスケット形成と含浸処理とが同じに実施できるために、工程短縮が可能になる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第15項による燃料電池によれば、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用を奏することが可能となる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第16項による燃料電池によれば

上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用に加え、ガスケットがセパレータに形成した溝に収まり、スタックを締め付けたときにガスケットが溝の中に完全に収納されることになる。また、端部でも中央部と同様、UEAとセパレータとが接触することになる。

更にまた、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第17項による燃料電池によれば、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の作用に加え、比較的高価な電解質膜の使用量を減量することが可能となる。

上記各請求項における「気孔率が低い」または「気孔率を低くする」等の表現は、多孔質体よりなるガス拡散層において、他の部分よりもガスケット形成部位の気孔率を低くすることによってこの部分の剛性ないし強度を高くすることであり、このような構造の低気孔率部分上にガスケットを形成することにより、ガスケットの形成を容易化することを意味している。また、形成されるガスケットの寸法形状等が標準化されるため（予定通りの形状に形成し易くなるため）、優れたシール性を確保することが可能となり、更に組立作業を容易化することが可能となることを意味している。更に、ガス拡散層は多孔質構造であるので、ガス拡散層の層方向のガスリーク防止の効果を発揮していることも意味している。含浸材はその硬さ等に応じて適宜必要な量を含浸させ、またその含浸率は、含浸する物質の剛性、形状または含浸方法等によって異なることになる。

ガス拡散層の気孔率は、一般的には60～90%であり、ガスケット形成部位の気孔率が触媒層と接する部位と比較して低いときは、前記フィラーの硬さ、形状、含浸方法にもよるが、おおむねその気孔の2%から100%に相当するが、一般的には50%程度以上である。

ガス拡散層のガスケット形成部位に塗布する接着剤としては、ガスケットとして用いるゴムの種類によって、シリコン系接着剤、フェノール系接着剤、エポキシ系接着剤、アクリル系接着剤、クマロン・インデン系接着剤等の熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、ゴムをベースとした接着剤、エポキシ基、アミノ基やビニル基等の官能基を含有するシラン系カップリング剤やチタン系カップリング剤等の

接着用プライマー類、前記熱可塑性樹脂系接着剤、熱硬化性接着剤またはゴム系接着剤に接着用プライマー類を配合した接着剤が適宜用いられる。

ガス拡散層のガスケット形成部位の表面粗さとしては、 $0.1\mu\text{m}$ 以上、好ましくは $1\mu\text{m}$ 以上であれば、ガスケットを形成するゴムとの密着性が充分確保できる表面粗さとして好都合である。一般的にはガス拡散層自体は多孔質構造であるため、この表面粗さ範囲に入っているものがあるが、前記フィラーとその量、その含浸方法等により、適宜、密着性に充分な表面粗さの確保が必要となる。

上記したように、含浸する物質（含浸材）としては、ゴム、樹脂、カーボンまたは無機材料等が好適である。

このうち先ず、含浸するゴムとしては、エチレンプロピレンゴム、フッ素ゴム、シリコーンゴム、フルオロシリコーンゴム、ブチルゴム、水素添加スチレンブタジエンゴム、水素添加スチレンイソブレンゴム、アクリルゴムもしくはフルオロアクリルゴム等の飽和系ゴムまたはポリエステル系エラストマー、ポリオレフィン系エラストマーもしくはポリアミド系エラストマー等の飽和系エラストマー等が用いられ、これらを加熱・加圧して含浸させ、またはこれらの溶液もしくはラテックスを含浸させる。また、液状シリコーンゴム、液状フルオロシリコーンゴム、液状フッ素ゴム、液状ブチルゴムまたは液状エチレンプロピレンゴム等の飽和系液状ゴム等が用いられ、これらを加熱、加圧もしくは加熱・加圧してまたは溶液にして含浸させる。

含浸する樹脂としては、熱硬化性樹脂または熱可塑性樹脂等が用いられる。熱硬化性樹脂は、常温で液状または加熱することで液状化するため、そのままだでもまたは溶剤等により希釈することにより用いられる。熱可塑性樹脂の場合は、加熱・加圧することにより、または溶剤等により希釈するかまたはエマルジョンとして用いられる。含浸方法は、その性状（主として粘度）により上記方法が適宜選ばれる。熱硬化性樹脂としては、シリコーン系樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、熱硬化型ポリイミド樹脂またはジアリルフタレート樹脂等が用いられ、これらの熱硬化性樹脂のプレポリマーをガス拡散層に含浸させる。熱可塑性樹脂

としては、ポリオレフィン系樹脂、ポリスルホン系樹脂、ポリエステル系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリイミド系樹脂、ポリアミドイミド系樹脂、ポリカーボネ系樹脂、フッ素系樹脂、ポリエーテルイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリスチレン、ポリフェニレンスルフィドまたはポリフェニレンエーテル等が用いられ、これらの樹脂を加熱溶融状態として、良溶剤に溶解して溶液状態として、または樹脂を微粒子状に水等の液体に分散した分散液の状態として、ガス拡散層に含浸させる。プレポリマーまたは分散液の粘度は、ガス拡散層に含浸可能な範囲であれば良く、含浸方法・含浸条件によって粘度は異なるが、おおむね  $10^0 \sim 10^4 \text{ Pa} \cdot \text{s}$  程度である。

含浸するカーボンとしては、カーボン粉末、カーボンブラック、グラファイト粉末、カーボン繊維またはグラファイト繊維等が用いられ、例えば粉体を液体に分散して、加圧スプレーまたは加圧注入等により含浸させる。また、これらの粉体をゴム、樹脂の溶液または分散液に加えて、その性状（主として粘度）に合わせて請求の範囲第7項記載の方法等により含浸しても良い。

含浸する無機材料としては、ガラス粉末、ガラス繊維、またはゾルからゲルに変化して無機材料となる物質等が用いられる。また、これらの粉体をゴム、樹脂の溶液または分散液に加えて、その性状（主として粘度）に合わせて請求の範囲第7項記載の方法等により含浸する。

ガスケットとして用いるゴムは、上記ガス拡散層のガスケット部位に含浸するゴムと同種、同じ系統のゴムまたは異質のゴムをその性状（主として粘度）に合わせて請求の範囲第7項記載の方法等により成形し、例えば、液状ゴムであれば請求の範囲第7項記載の何れの方法でも用いられる。高粘度のゴムであれば通常射出成形または圧縮成形法が用いられる。接着性ゴムとしては、ゴム自体が接着性を有するゴム、またはゴムに接着性を付与する接着改良剤を添加したゴム等が用いられ、その例として、自己接着性液状シリコーンゴム、自己接着性液状フッ素ゴム、またはフッ素ゴムにエポキシ系接着剤もしくはフェノール系接着剤等を配合したゴム等を挙げることができる。

絶縁スペーサは、液状ゴム、熱硬化性樹脂または熱可塑性樹脂により成形することができる。液状ゴムを使用する場合は、ガス拡散層に含浸する液状ゴムまたはガスケットを形成する液状ゴムと同種の材料を使用し、同時成形することができる。また、熱硬化性樹脂または熱可塑性樹脂を使用する場合は、ガス拡散層に含浸する樹脂と同種のものを使用し、同時成形することができる。もちろん、上記とは異なる種類の材料により別途形成しても良い。熱可塑性樹脂としてはポリテトラフルオロエチレン（PTFE）等のフッ素系樹脂やポリオレフィン等が適している。

#### 図面の簡単な説明

第1図は、本発明の第一実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第2図は本発明の第二実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第3図は本発明の第三実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第4図は本発明の第四実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第5図は本発明の第五実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第6図は本発明の第六実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第7図は本発明の第七実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第8図は本発明の第八実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第9図は本発明の第九実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第10図は本発明の第十実施例に係る燃料電池の要部断面図であり、第11図は本発明の第十一実施例に係るガス拡散層の要部断面図であり、第12図は本発明の第十二実施例に係るガス拡散層の要部断面図であり、第13図は本発明の第十三実施例に係るガス拡散層の要部断面図であり、第14図（A）および（B）は本発明の第十四実施例に係るガス拡散層の要部断面図であり、第15図は本発明の第十五実施例に係る燃料電池の製造方法の工程説明図であり、第16図は本発明の第十五実施例に係る燃料電池の製造方法の工程説明図であり、第17図は本発明の第十五実施例に係る燃料電池の製造方法の工程説明図であり、第18図は本発明の第十五実施例に係る燃料電池の製造方法の工程説明図であり、第19図は本発明の第十五実施例に係る燃料

電池の製造方法の工程説明図であり、第20図は本発明の第十五実施例に係る燃料電池の製造方法の工程説明図であり、第21図は従来例に係る燃料電池の要部断面図であり、第22図は従来例に係る燃料電池の要部断面図である。

発明を実施するための最良の形態

つぎに本発明の実施例を図面にしたがって説明する。

第一実施例・・・

第1図は、絶縁スペーサとしてガスケットと異種材料のシートを予め挿入してUEAを作成後、ガスケットを形成した第一の例を示している。

すなわち、電解質膜2の両面に触媒層3, 4が配置されて膜電極複合体1が形成されるとともに、この膜電極複合体1の両面にガス拡散層5, 6が配置されてUEA7が形成されており、このUEA7の両面にセパレータ8, 9が配置される。カーボン繊維等の多孔質体よりなるガス拡散層5, 6は、その寸法を触媒層3, 4の寸法よりも大きく設定されていて、その平面方向突出部分に予めガスケット成形材料が含浸されることによって気孔率の比較的低い含浸部10, 11が形成されており、この含浸部10, 11同士の間にはガスケット15, 16とは異種の材料のシートよりなる絶縁スペーサ12, 13が介装されている。含浸部10, 11および絶縁スペーサ12, 13には貫通孔14が厚さ方向に貫通するように所要数形成されている。セパレータ8, 9と対峙してガス拡散層5, 6におけるガスケット形成部位である含浸部10, 11の表面上にはゴム状弾性材製のガスケット15, 16が配置されており、このガスケット15, 16同士は貫通孔14を介して一体成形されている。セパレータ8, 9にはガスケット15, 16に対応して溝状のガスケット受入部17, 18が形成されている。電解質膜2はその寸法をガス拡散層5, 6の寸法より小さく設定されており、よって電解質膜2は貫通孔14に到達していない。電解質膜2は少なくとも触媒層3, 4の端部よりも突出していれば良い。

第二実施例・・・

第2図は、絶縁スペーサとしてガスケットと異種材料のシートを予め挿入してUEAを作成後、ガスケットを形成した第二の例を示している。

すなわち、電解質膜2の両面に触媒層3, 4が配置されて膜電極複合体1が形成されるとともに、この膜電極複合体1の両面にガス拡散層5, 6が配置されてUEA7が形成されており、このUEA7の両面にセパレータ8, 9が配置される。カーボン繊維等の多孔質体よりなるガス拡散層5, 6は、その寸法を触媒層3, 4の寸法よりも大きく設定されていて、その平面方向突出部分に予めガスケット成形材料が含浸されることによって気孔率の比較的低い含浸部10, 11が形成されており、この含浸部10, 11同士の間にガスケット15, 16とは異種の材料のシートよりなる絶縁スペーサ12, 13が介装されている。含浸部10, 11および絶縁スペーサ12, 13には貫通孔14が厚さ方向に貫通するように所要数形成されている。セパレータ8, 9と対峙してガス拡散層5, 6におけるガスケット形成部位である含浸部10, 11の表面上にはゴム状弾性材製のガスケット15, 16が配置されており、このガスケット15, 16同士は貫通孔14を介して一体成形されている。セパレータ8, 9にはガスケット15, 16に対応して溝状のガスケット受入部17, 18が形成されている。電解質膜2はその寸法をガス拡散層5, 6の寸法と同等に設定されていて電解質膜2は貫通孔14に到達しており、よってこの電解質膜2にも貫通孔14が形成されている。含浸部10, 11の含浸処理は、UEA7一体化処理前に予め実施しても、UEA7一体化後、ガスケット15, 16形成時に同時に含浸しても良い。

### 第三実施例・・・

第3図は、絶縁スペーサを含浸部ガスケット材料と同材料で予め形成してUEAを作成後、ガスケットを形成した例を示している。

すなわち、電解質膜2の両面に触媒層3, 4が配置されて膜電極複合体1が形成されるとともに、この膜電極複合体1の両面にガス拡散層5, 6が配置されてUEA7が形成されており、このUEA7の両面にセパレータ8, 9が配置される。カーボン繊維等の多孔質体よりなるガス拡散層5, 6は、その寸法を触媒層



3, 4の寸法よりも大きく設定されていて、その平面方向突出部分に予めガスケット成形材料が含浸されることによって気孔率の比較的低い含浸部10, 11が形成されており、この含浸部10, 11同士の間、このガスケット材料含浸部10, 11と同種の材料よりなる絶縁スペーサ12, 13が一体成形されて配置されている。含浸部10, 11および絶縁スペーサ12, 13には貫通孔14が厚さ方向に貫通するように所要数形成されている。セパレータ8, 9と対峙してガス拡散層5, 6におけるガスケット形成部位である含浸部10, 11の表面上にはゴム状弾性材製のガスケット15, 16が配置されており、このガスケット15, 16同士は貫通孔14を介して一体成形されている。セパレータ8, 9にはガスケット15, 16に対応して溝状のガスケット受入部17, 18が形成されている。電解質膜2はその寸法をガス拡散層5, 6の寸法より小さく設定されているが、ガス拡散層5, 6の寸法と同等であっても良く、この場合には電解質膜2にも貫通孔14が形成される。

#### 第四実施例・・・

第4図は、電解質膜を絶縁スペーサとしてUEAを作成後、ガスケットを形成した例を示している。この例によれば、ガスケット形成部のUEA厚さが反応部より薄くなっても適切なガスケットを形成することができる。

すなわち、電解質膜2の両面に触媒層3, 4が配置されて膜電極複合体1が形成されるとともに、この膜電極複合体1の両面にガス拡散層5, 6が配置されてUEA7が形成されており、このUEA7の両面にセパレータ8, 9が配置される。カーボン繊維等の多孔質体よりなるガス拡散層5, 6は、その寸法を触媒層3, 4の寸法よりも大きく設定されていて、その平面方向突出部分に予めガスケット成形材料が含浸せしめられることによって気孔率の比較的低い含浸部10, 11が形成されている。上記第一ないし第三実施例と異なって、この含浸部10, 11同士の間、固有の絶縁スペーサは配置されておらず、電解質膜2が絶縁スペーサとしての機能を兼ねてガス拡散層5, 6の含浸部10, 11に直接接触している。含浸部10, 11は、電解質膜2を接触させるため、ガスケット15, 1

6を形成するゴムにより集束方向に変形せしめられている。含浸部10, 11および電解質膜2には貫通孔14が厚さ方向に貫通するように所要数形成されている。セパレータ8, 9と対峙してガス拡散層5, 6におけるガスケット形成部位である含浸部10, 11の表面上にはゴム状弾性材製のガスケット15, 16が配置されており、ガスケット15, 16同士は貫通孔14を介して一体成形されている。セパレータ8, 9には、ガスケット15, 16に対応して溝状のガスケット受入部17, 18が形成されている。電解質膜2の寸法はガス拡散層5, 6の寸法と同等とされている。

#### 第五実施例・・・

第5図は、絶縁スペーサとガスケットとを予め一体成形した後にUEAを作成した例を示している。

すなわち、電解質膜2の両面に触媒層3, 4が配置されて膜電極複合体1が形成されるとともに、この膜電極複合体1の両面にガス拡散層5, 6が配置されてUEA7が形成されており、このUEA7の両面にセパレータ8, 9が配置される。カーボン繊維等の多孔質体よりなるガス拡散層5, 6は、その寸法を触媒層3, 4の寸法よりも大きく設定されていて、その平面方向突出部分に予めガスケット成形材料が含浸されることによって気孔率の比較的低い含浸部10, 11が形成されており、この含浸部10, 11同士の間にガスケット15, 16と同種の材料よりなる絶縁スペーサ12, 13がそれぞれ介装されている。含浸部10, 11には貫通孔14が厚さ方向に貫通するように形成されている。セパレータ8, 9と対峙してガス拡散層5, 6におけるガスケット形成部位である含浸部10, 11の表面上にはゴム状弾性材製のガスケット15, 16がそれぞれ配置されており、ガスケット15, 16は貫通孔14を介して絶縁スペーサ12, 13とそれぞれ一体成形されている。セパレータ8, 9にはガスケット15, 16に対応して溝状のガスケット受入部17, 18が形成されている。電解質膜2はその寸法をガス拡散層5, 6の寸法よりも小さく設定されているが、ガス拡散層5, 6の寸法と同等であっても良い。

尚、本実施例では、絶縁スペーサ12と13が別体である例を示しているが、前記の絶縁スペーサ12と13が一体化された絶縁スペーサとして形成されていても良い。

#### 第六実施例・・・

第6図は、絶縁スペーサとガスケットとを予め一体成形した後にUEAを作成した他の例を示す。ガス拡散層5, 6の含浸部10, 11に形成したガスケット15, 16と絶縁スペーサ12, 13はそれぞれ一体化されている。含浸部10, 11にフェノール樹脂を含浸した後に、貫通孔14を開け、熱可塑性樹脂シートからなる絶縁スペーサ12, 13を配置し、液状シリコンゴムによりガスケット15, 16を形成することにより、前記ガスケット15, 16と前記絶縁スペーサ12, 13とをそれぞれ一体化している。

#### 第七実施例・・・

第7図は、絶縁スペーサとガスケットとを予め一体成形した後にUEAを作成した他の例を示す。ガス拡散層5, 6の含浸部10, 11に形成したガスケット15, 16と絶縁スペーサ12, 13はそれぞれ一体化されている。ガス拡散層5, 6に貫通孔14を開け、熱可塑性樹脂シートからなる絶縁スペーサ12, 13を配置し、液状シリコンゴムにより含浸部10, 11へのシリコンゴム含浸およびガスケット15, 16形成を同時に行なうとともに、前記ガスケット15, 16と前記絶縁スペーサ12, 13をそれぞれ一体化している。

#### 第八実施例・・・

第8図は、絶縁スペーサとしてガスケットと異種材料のシートを予め挿入してUEAを作成後、ガスケットを形成した第三の例を示している。

すなわち、電解質膜2の両面に触媒層3, 4が配置されて膜電極複合体1が形成されるとともに、この膜電極複合体1の両面にガス拡散層5, 6が配置されてUEA7が形成されており、このUEA7の両面にセパレータ8, 9が配置される。カーボン繊維等の多孔質体よりなるガス拡散層5, 6は、その寸法を触媒層3, 4の寸法よりも大きく設定されていて、その平面方向突出部分に予めガスケ

ット成形材料が含浸されることによって気孔率の比較的低い含浸部10, 11が形成されており、この含浸部10, 11同士の間にはガスケット15, 16とは異種の材料のシートよりなる絶縁スペーサ12, 13が介装されている。セパレータ8, 9と対峙してガス拡散層5, 6におけるガスケット形成部位である含浸部10, 11の表面上にはゴム状弾性材製のガスケット15, 16が配置されており、このガスケット15, 16同士は断面略コ字形をなす連結部19を介して一体成形されている。連結部19はガス拡散層5, 6の端部を覆い、また同時に絶縁スペーサ12, 13の端部を覆っている。セパレータ8, 9にはガスケット15, 16に対応して段差状のガスケット受入部17, 18が形成されている。電解質膜2はその寸法をガス拡散層5, 6の寸法よりも小さく設定されているが、ガス拡散層5, 6の寸法と同等であっても良い。

#### 第九実施例・・・

第9図は、絶縁スペーサとしてガスケットと異種材料のシートを予め挿入してUEAを作成後、ガスケットを形成した第四の例を示している。

すなわち、電解質膜2の両面に触媒層3, 4が配置されて膜電極複合体1が形成されるとともに、この膜電極複合体1の両面にガス拡散層5, 6が配置されてUEA7が形成されており、このUEA7の両面にセパレータ8, 9が配置される。カーボン繊維等の多孔質体よりなるガス拡散層5, 6は、その寸法を触媒層3, 4の寸法よりも大きく設定されていて、その平面方向突出部分に予めガスケット成形材料が含浸されることによって気孔率の比較的低い含浸部10, 11が形成されており、この含浸部10, 11同士の間にはガスケット15, 16とは異種の材料のシートよりなる絶縁スペーサ12, 13が介装されている。セパレータ8, 9と対峙してガス拡散層5, 6におけるガスケット形成部位である含浸部10, 11の表面上にはゴム状弾性材製のガスケット15, 16が配置されており、このガスケット15, 16はそれぞれが接着剤等によって含浸部10, 11に接合されている。セパレータ8, 9にはガスケット15, 16に対応して溝状のガスケット受入部17, 18が形成されている。電解質膜2はその寸法をガス

拡散層 5, 6 の寸法よりも小さく設定されているが、ガス拡散層 5, 6 の寸法と同等であっても良い。

#### 第十実施例・・・

第 10 図は、U E A 一体化前に予めガスケット材料含浸部へのガスケット材料含浸とガスケット形成と絶縁スペーサ形成を実施した例を示している。

すなわち、電解質膜 2 の両面に触媒層 3, 4 が配置されて膜電極複合体 1 が形成されるとともに、この膜電極複合体 1 の両面にガス拡散層 5, 6 が配置されて U E A 7 が形成されており、この U E A 7 の両面にセパレータ 8, 9 が配置される。カーボン繊維等の多孔質体よりなるガス拡散層 5, 6 は、その寸法を触媒層 3, 4 の寸法よりも大きく設定されていて、その平面方向突出部分に予めガスケット成形材料が含浸されることによって気孔率の比較的低い含浸部 10, 11 が形成されており、この含浸部 10, 11 同士の間にガスケット 15, 16 と同種の材料よりなる絶縁スペーサ 12, 13 が介装されている。セパレータ 8, 9 と対峙してガス拡散層 5, 6 におけるガスケット形成部位である含浸部 10, 11 の表面上にはゴム状弾性材製のガスケット 15, 16 が配置されており、このガスケット 15, 16 はそれぞれが接着剤等によって含浸部 10, 11 に接合されている。セパレータ 8, 9 にはガスケット 15, 16 に対応して溝状のガスケット受入部 17, 18 が形成されている。電解質膜 2 はその寸法をガス拡散層 5, 6 の寸法よりも小さく設定されているが、ガス拡散層 5, 6 の寸法と同等であっても良い。

#### 第十一実施例・・・

第 11 図は、ガス拡散層の単品第一例として、ガス拡散層のガスケット材料含浸部へシリコンゴムを含浸した例を示しており、すなわち、ガス拡散層 5 におけるガスケット形成部位にシリコンゴムが含浸されて含浸部 10 が形成されている。

#### 第十二実施例・・・

第 12 図は、ガス拡散層の単品第二例として、ガス拡散層のガスケット材料含

浸部へのシリコーンゴム含浸処理とシリコーンゴムの絶縁スペーサ形成処理を一体化で行なった例を示しており、すなわち、ガス拡散層5におけるガスケット形成部位にシリコーンゴムが含浸されて含浸部10が形成されるとともに、この含浸部10の一方の面に同じくシリコーンゴムよりなる絶縁スペーサ12が一体成形されている。

#### 第十三実施例・・・

第13図は、ガス拡散層の単品第三例として、ガス拡散層のガスケット材料含浸部へのシリコーンゴム含浸処理とシリコーンゴムのガスケット形成処理と絶縁スペーサ形成処理を一体化で行なった例を示しており、すなわち、ガス拡散層5におけるガスケット形成部位にシリコーンゴムが含浸されて含浸部10が形成されるとともに、この含浸部10の一方の面に同じくシリコーンゴムよりなる絶縁スペーサ12が一体成形され、含浸部10の反対側の面に同じくシリコーンゴムよりなるガスケット15が一体成形されている。

#### 第十四実施例・・・

第14図(A)は、ガス拡散層の単品第四例として、ガス拡散層5のガスケット形成部位を圧縮してかさ密度を高めた後、ガスケット15、16を形成せしめた例であり、同図(B)は、ガス拡散層5のガスケット形成部位を圧縮してかさ密度を高めるとともに、ガスケット材料含浸部10へのシリコーンゴム含浸処理とシリコーンゴムのガスケット15、16形成処理を一体化で行なった例を示している。すなわち、同図(B)は、ガス拡散層5におけるガスケット形成部位にシリコーンゴムが含浸されて含浸部10が形成されるとともに、この含浸部10の両面にそれぞれシリコーンゴムよりなるガスケット15、16が一体成形されている。

#### 第十五実施例・・・

つぎに燃料電池の製造方法の一例を示すと、以下のとおりである。

すなわち先ず、第15図に示すように、上記第十二実施例と同じ要領で、ガス拡散層5のガスケット材料含浸部10へのガスケット材料含浸処理とガスケット

材料の絶縁スペーサ 12 形成処理を一体化で行なってガス拡散層 5 を形成し、次いで第 16 図に示すように、膜電極複合体 1 の両面にガス拡散層 5、6 を接着一体化して UEA 7 を形成する。次いで第 17 図に示すように、所要数の貫通孔 14、15 およびマニホールド 20 を貫通形成し、次いで第 18 図に示すように、ガスケット 15、16 を形成し、次いで第 19 図に示すように、セパレータ 8、9 を配置してスタックを組み立てる。第 20 図は、上記の製造方法にて組み立てた第 19 図の電池スタックにおいて、反応ガスをセパレータ面内に供給するためのガス導入部（ガス連絡溝）62 を含む断面図を示している。ガス連絡溝 62 にはガス拡散層 5 のガスケット材料含浸部 10 が対向していることから、従来必要としていたスペーサ 63 が不要となっている。また、ガス連絡溝 62 と対向するガス拡散層 5 のガスケット材料含浸部 10 にはガスケットを設ける必要がないために、貫通孔を設けていない。

#### 発明の効果および産業上の利用可能性

本発明は、以下の効果を奏する。

すなわち先ず、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第 1 項による燃料電池においては、上記構成および作用により、スタッキング後の締付けによるセパレータおよび UEA の破損を防止することができる。また、全てのガスケットに均一な締付け圧力をかけることができ、確実に良好なシールが得られ、発電効率の向上とともに安全性を確保することができる。また、ガスケットの製造コストを低減することができる。また、セパレータと UEA を交互に積層する積層工程において、作業が簡単になり自動化することができる。このことによりスタック製作費用を削減することができる。また、積層に分解が必要になった場合でも、セパレータ、ガスケット、UEA など構造材料を破損することなく容易に作業を進められることから、構造材料の再利用、修理が可能になる。また、ガスケット形成部の UEA の厚さに関係なく、良好なシール性能を得ることができる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第 2 項による燃料電池においては

上記構成および作用により、ガスケット、絶縁スペーサ、ガスケット材料含浸部を容易に形成できることから、スタック製作費用を削減することができる。また絶縁スペーサを容易にガス拡散層に配置することができる。また、全てのガスケットに均一な締付け圧力をかけることができ、確実に良好なシールが得られ、発電効率の向上とともに安全性を確保することができる。また、セパレータとUEAを交互に積層する積層工程において、作業が簡単になり自動化することができる。このことによりスタック製作費用を削減することができる。また、積層に分解が必要になった場合でも、セパレータ、ガスケット、UEAなど構造材料を破損することなく容易に作業を進められることから、構造材料の再利用、修理が可能になる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第3項による燃料電池においては上記構成および作用により、スタッキング後の締付けによるセパレータおよびUEAの破損を防止することができる。また、全てのガスケットに均一な締付け圧力をかけることができ、確実に良好なシールが得られ、発電効率の向上とともに安全性を確保することができる。また、ガスケットの製造コストを低減することができる。また、ガス拡散層端部、ガス拡散層と絶縁スペーサ界面または絶縁スペーサ界面からの反応ガスリークを確実に防止できることから、安全性を向上することができる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第4項による燃料電池においては上記構成および作用により、スタッキング後の締付けによるセパレータおよびUEAの破損を防止することができる。また、全てのガスケットに均一な締付け圧力をかけることができ、確実に良好なシールが得られ、発電効率の向上とともに安全性を確保することができる。また、ガスケットの製造コストを低減することができる。また、セパレータとUEAを交互に積層する積層工程において、作業が簡単になり自動化することができる。このことによりスタック製作費用を削減することができる。また、積層に分解が必要になった場合でも、セパレータ、ガスケット、UEAなど構造材料を破損することなく容易に作業を進められること



から、構造材料の再利用、修理が可能になる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第5項による製造方法においては上記構成および作用により、セパレータとUEAを交互に積層する積層工程において、作業が簡単になり自動化することができる。このことによりスタック製作費用を削減できる。また、積層に分解が必要になった場合でも、セパレータ、ガスケット、UEAなど構造材料を破損することなく容易に作業を進められることから、構造材料の再利用、修理が可能になる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第6項による製造方法においては上記構成および作用により、上記した請求の範囲第3項または第4項と同等の効果に加え、以下の効果がある。すなわち、セパレータとUEAを交互に積層する積層工程において、作業が簡単になり自動化することができる。このことによりスタック製作費用を削減することができる。また積層に分解が必要になった場合でも、セパレータ、ガスケット、UEAなど構造材料を破損することなく容易に作業を進められることから、構造材料の再利用、修理が可能になる。また、量産化時に大幅な製造コスト削減が可能になる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第7項による製造方法においては上記構成および作用により、接着性ゴム材料を使用することにより、上記した請求の範囲第6項と同等の効果がある。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第8項による製造方法においては上記構成および作用により、ガス拡散層の表面粗さを確保してこれにガスケットを形成することにより、上記した請求の範囲第6項と同等の効果がある。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第9項による燃料電池においては上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果に加え、以下の効果がある。すなわち、ガス拡散層へのガスケットの形成が容易になり、製造コストを低減することができる。また、ガス拡散層端部からの反応ガスリークを防止することができ、発電効率の向上とともに安全性を確保することができる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第10項による燃料電池においては、上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果に加え、以下の効果がある。すなわち、ガス拡散層へのガasketの形成が容易になり、製造コストを低減することができる。また、ガス拡散層端部からの反応ガスリークを防止でき、発電効率の向上とともに安全性を確保することができる。また、ガasket形成部位に接着剤を塗布することなしに、ガasketをガス拡散層に固定することができる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第11項による燃料電池においては、上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果に加え、以下の効果がある。すなわち、ガス拡散層の端部からのガasketトリックに対して高いガスシール性能を得ることができるとともに、ガス拡散層とセパレータの界面漏れに対して高いガスシール性能を得ることができ、発電効率の向上とともに安全性を確保することができる。また、UEA一体化後に貫通孔を設けるときに、アノード極、カソード極のガス拡散層の短絡を防止することができる。また、積層締付けによるガス拡散層端部の圧縮座くつを防止することができる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第12項によるガス拡散層においては、上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果に加え、以下の効果がある。すなわち、UEA一体化後に貫通孔を設けるときにアノード極、カソード極のガス拡散層の短絡を防止することができる。また、積層締付けによるガス拡散層端部の圧縮座くつを防止することができる。また、UEAの製造コストを低減することができる。また、一体化接着のミスが少なくなり、歩留まりを向上することができる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第13項によるガス拡散層においては、上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果がある。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第14項による製造方法において

は、上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果に加え、UEA製造コストを低減することができる。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第15項による燃料電池においては、上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果がある。

また、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第16項による燃料電池においては、上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果に加え、以下の効果がある。すなわち、UEAとセパレータを交互に積層するときに、特別な位置合わせ治具が不要となり、容易に積層が可能となるために、スタック製造コストを低減することができる。また、高いシール性能を発揮することができ、発電効率の向上とともに安全性を確保することができる。また積層体締付け時の端部でのUEAおよびセパレータの屈折変形による破損を防止することができる。

更にまた、上記構成を備えた本発明の請求の範囲第17項による燃料電池においては、上記構成および作用により、上記した請求の範囲第1項ないし第4項と同等の効果に加え、UEAの製造コストを低減することができる。

## 請 求 の 範 囲

1. 電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体と、該膜電極複合体の両面に配置した第一および第二のガス拡散層と、前記第一および第二のガス拡散層に反応ガスをそれぞれ供給するためのセパレータと、前記反応ガスをシールするためのガスケットとを備えてなる燃料電池において、

ガスケットはセパレータと対峙してガス拡散層表面上に形成され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位は触媒層と接する部位と比較して気孔率が低く、第一および第二のガス拡散層に配置した前記ガスケットは少なくとも前記第一および第二のガス拡散層を共通に貫通する貫通孔を介して一体化したことを特徴とする燃料電池。

2. 電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体と、該膜電極複合体の両面に配置した第一および第二のガス拡散層と、前記第一および第二のガス拡散層に反応ガスをそれぞれ供給するためのセパレータと、前記反応ガスをシールするためのガスケットとを備えてなる燃料電池において、

ガスケットはセパレータと対峙してガス拡散層表面上に形成され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位は触媒層と接する部位と比較して気孔率が低く、第一および第二のガス拡散層に配置した前記ガスケットはそれぞれのガス拡散層に設けた貫通孔を介しそれらガス拡散層の背面に設けた絶縁スペーサに繋がっていることを特徴とする燃料電池。

3. 電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体と、該膜電極複合体の両面に配置した第一および第二のガス拡散層と、前記第一および第二のガス拡散層に反応ガスをそれぞれ供給するためのセパレータと、前記反応ガスをシールするためのガスケットを備えてなる燃料電池において、

ガスケットはセパレータと対峙してガス拡散層表面上に形成され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位は触媒層と接する部位と比較して気孔率が低く、第一および第二のガス拡散層に配置した前記ガスケットは少なくとも前記

第一および第二のガス拡散層の端部を覆い一体化したことを特徴とする燃料電池。

4. 電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体と、該膜電極複合体の両面に配置した第一および第二のガス拡散層と、前記第一および第二のガス拡散層に反応ガスをそれぞれ供給するためのセパレータと、前記反応ガスをシールするためのガスケットを備えてなる燃料電池において、

ガスケットはセパレータと対峙してガス拡散層表面上に形成され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位は触媒層と接する部位と比較して気孔率が低減されていることを特徴とする燃料電池。

5. 請求の範囲第3項または第4項に記載した燃料電池のガスケット製造方法において、

ガス拡散層の気孔率が低いガスケット形成部位に接着剤を塗布し、その上に予め所定形状に形成したガスケットを接合することを特徴とする燃料電池ガスケット製造方法。

6. 請求の範囲第3項または第4項に記載した燃料電池のガスケット製造方法において、

ガス拡散層の気孔率が低いガスケット形成部位に接着剤を塗布し、その上に射出成形法、プリント法、ディスペンサ法、スプレー法または圧縮成形法の少なくとも何れかの方法によりガスケットを成形することを特徴とする燃料電池ガスケット製造方法。

7. 請求の範囲第3項または第4項に記載した燃料電池のガスケット製造方法において、

ガス拡散層の気孔率が低いガスケット形成部位に、接着性ゴムを材料として射出成形法、プリント法、ディスペンサ法、スプレー法または圧縮成形法の少なくとも何れかの方法によりガスケットを成形することを特徴とする燃料電池ガスケット製造方法。

8. 請求の範囲第3項または第4項に記載した燃料電池のガスケット製造方法

において、

ガス拡散層の気孔率が低いガスケット形成部位の表面粗さを確保し、その上に射出成形法、プリント法、ディスペンサ法、スプレー法または圧縮成形法の少なくとも何れかの方法によりガスケットを成形することを特徴とする燃料電池ガスケット製造方法。

9. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池において、ガス拡散層のガスケット形成部位にゴム、樹脂、カーボン、無機材料の少なくとも何れかを含浸することにより、前記ガスケット形成部位の気孔率を低減したことを特徴とする燃料電池。

10. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池において、ガス拡散層のガスケット形成部位のかさ密度を高くし、気孔率を低減したことを特徴とする燃料電池。

11. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池において、ガス拡散層のガスケット形成部位に予めゴム、樹脂、カーボン、無機材料の少なくとも何れかを予め含浸し、膜電極複合体と第一および第二のガス拡散層を接着した後にゴム状弾性材からなるガスケットを形成したことを特徴とする燃料電池。

12. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池に使用するガス拡散層において、

ガス拡散層のガスケット形成部位にゴムまたは樹脂が含浸され、前記含浸部の一方の面にゴムまたは樹脂からなる絶縁スペーサが形成されていることを特徴とする燃料電池用ガス拡散層。

13. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池に使用するガス拡散層において、ガス拡散層のガスケット形成部位にゴムまたは樹脂が含浸され、少なくとも前記ガス拡散層のガスケット形成部位にゴム状弾性材からなるガスケットが形成されていることを特徴とする燃料電池用ガス拡散層。

14. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池のガスケット

ト製造方法において、

少なくとも電解質膜の両面に触媒層をそれぞれ配置した膜電極複合体の両面に第一および第二のガス拡散層を配置し接着した後に、ゴムまたは樹脂によりセパレータと対峙した前記ガス拡散層表面上へのガスケット形成およびガス拡散層のガスケット形成部位への含浸処理を同時に実施することを特徴とする燃料電池ガスケット製造方法。

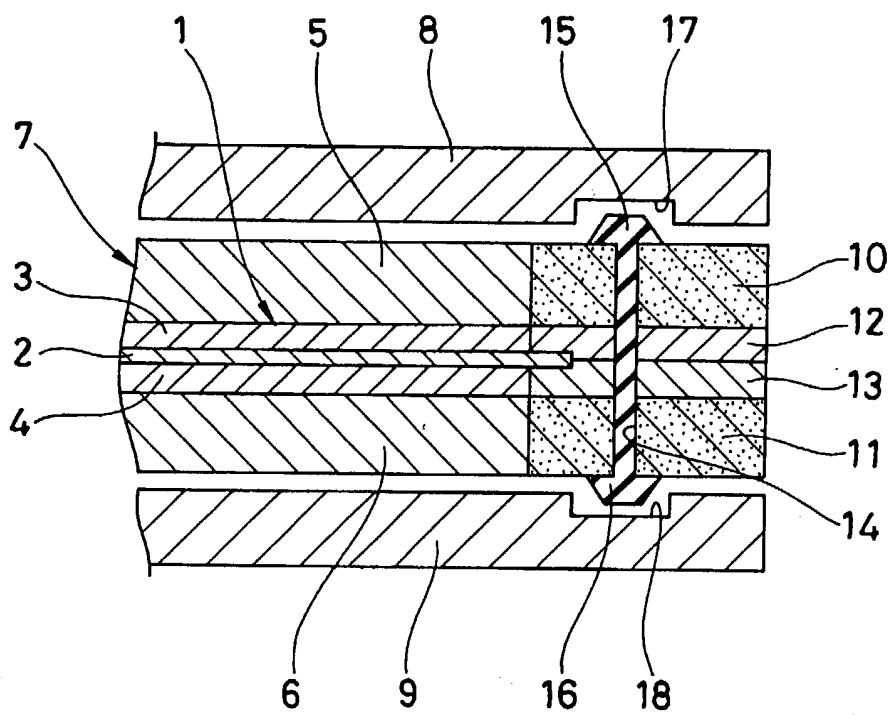
15. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池において、セパレータと対峙して第一および第二のガス拡散層表面上にそれぞれガスケットが形成された部位では、前記ガスケットは膜電極複合体を挟んで対応する位置に設けられていることを特徴とする燃料電池。

16. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池において、セパレータには少なくともガスケットを収める溝が形成され、前記溝は前記ガスケット高さより浅く、その断面積は前記ガスケットの断面積より大きいことを特徴とする燃料電池。

17. 請求の範囲第1項ないし第4項の何れかに記載した燃料電池において、電解質膜の外寸法はガス拡散層の外寸法よりも小さく、前記電解質膜は前記ガス拡散層の面内部に配置されていることを特徴とする燃料電池。

1/18

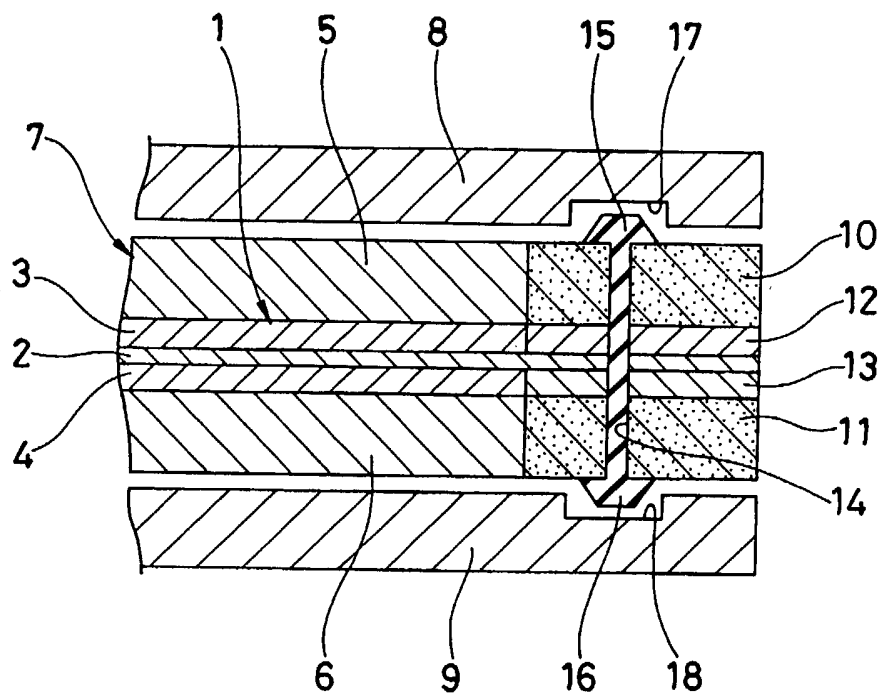
第1図





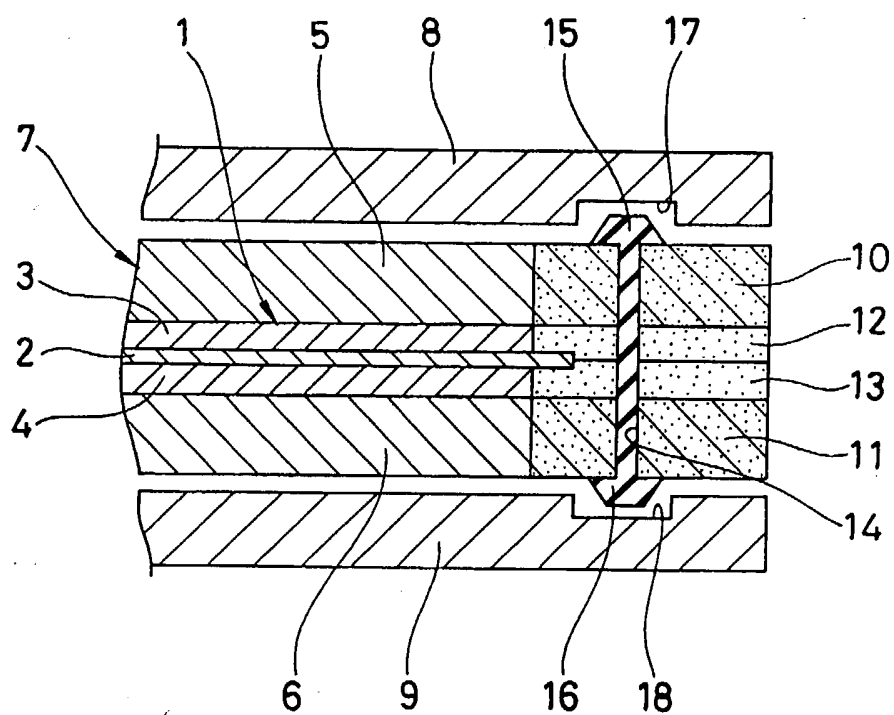
2/18

第2図



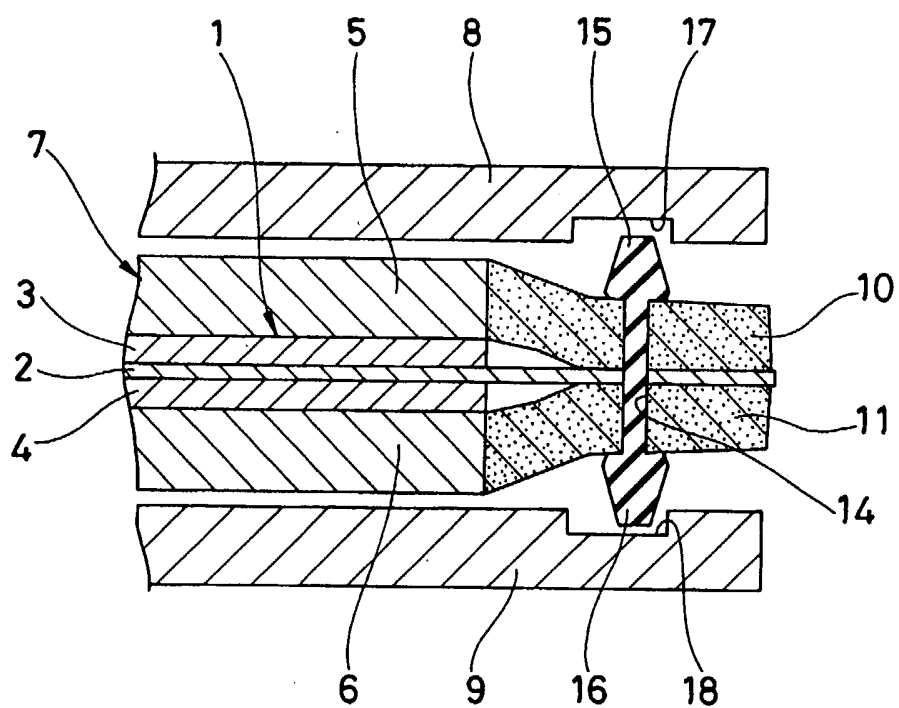
3/18

第3図



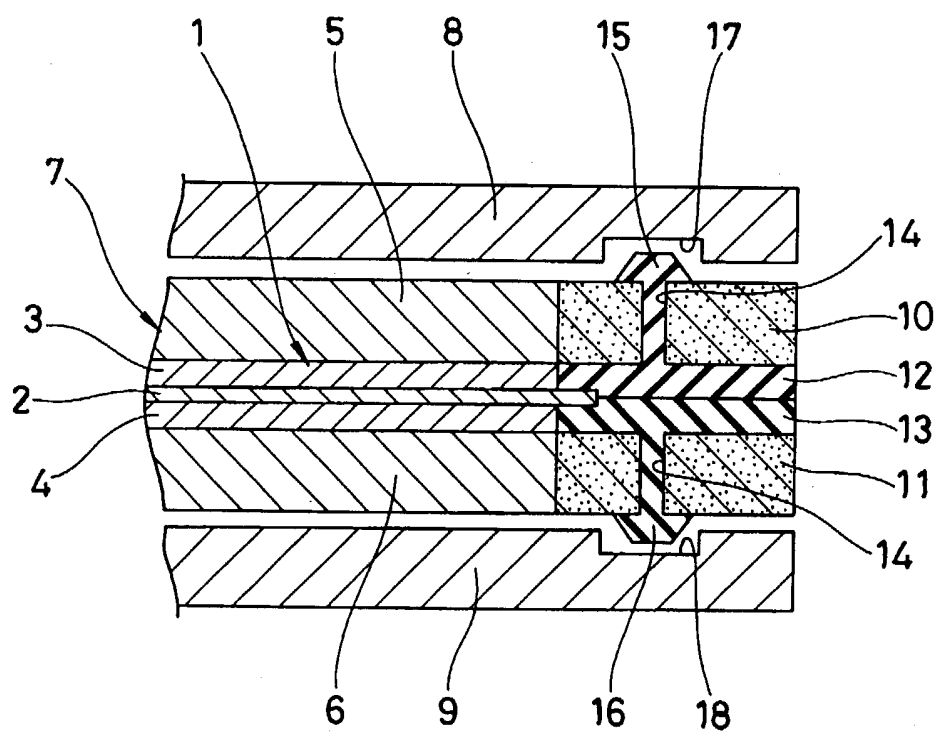
4/18

第4図



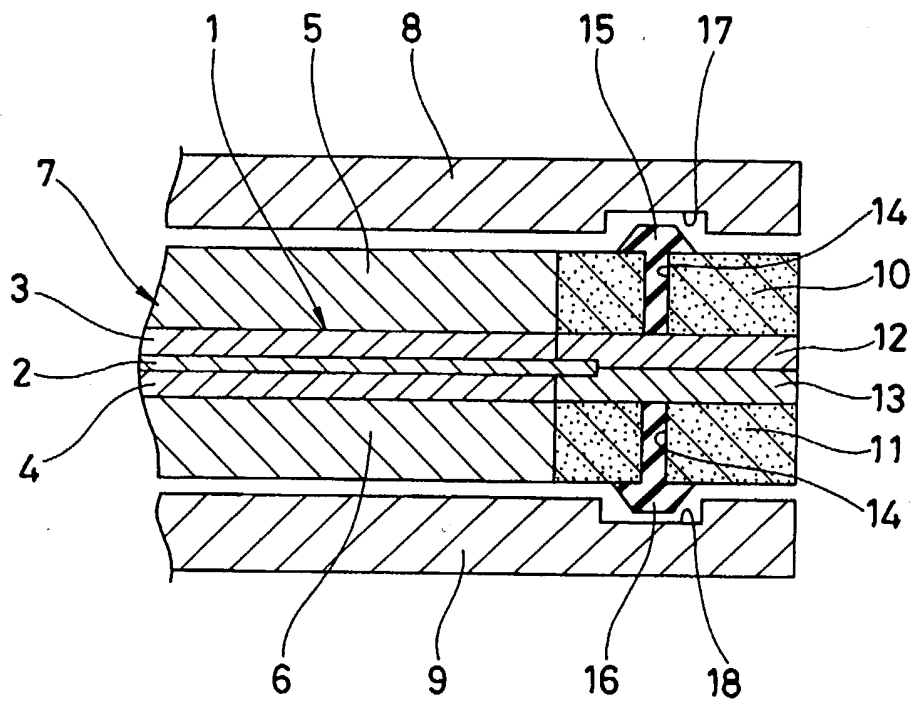
5/18

第5図



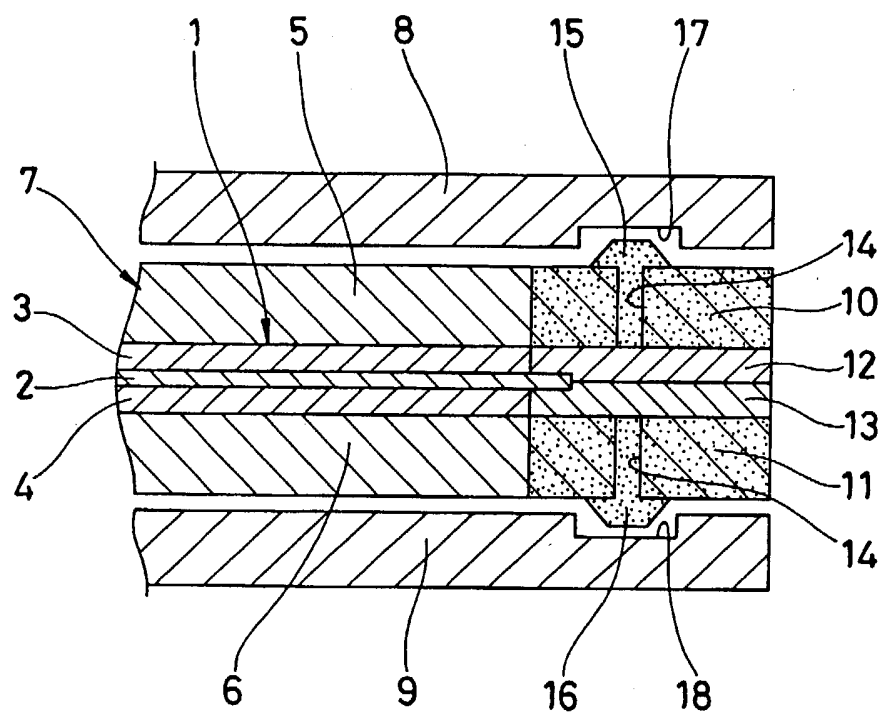
6/18

第 6 図



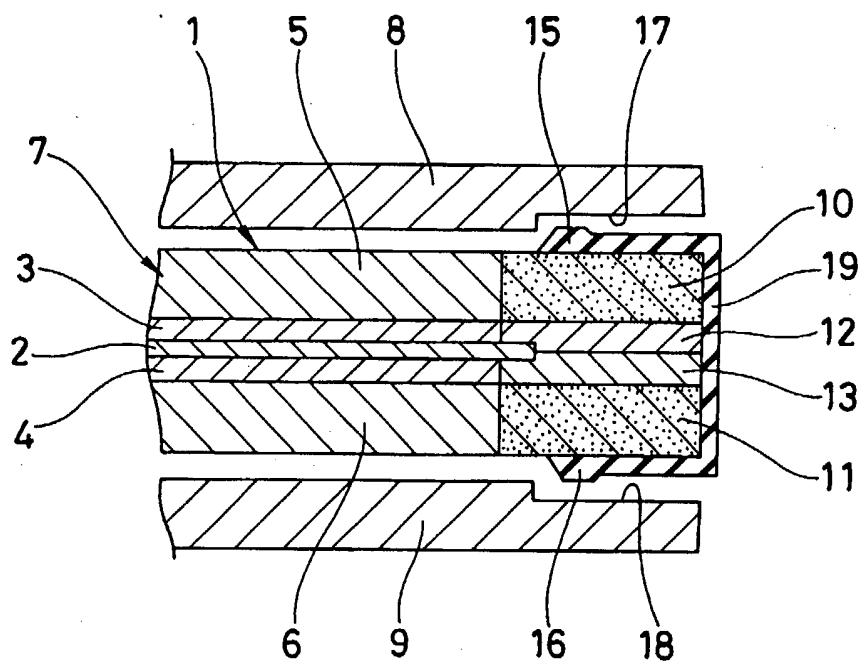
7/18

第7図



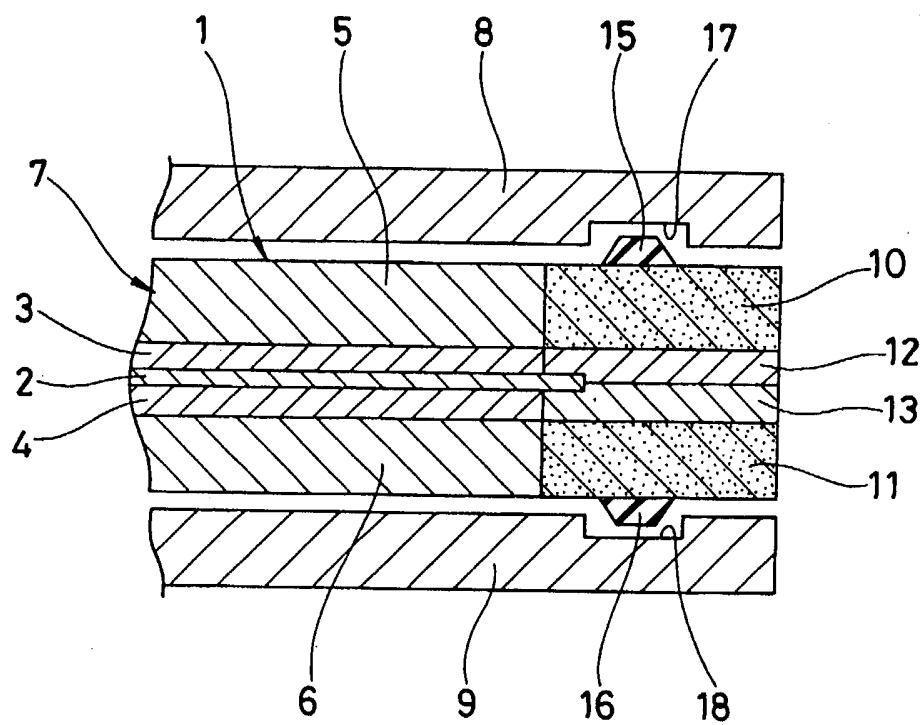
8/18

第8図



9/18

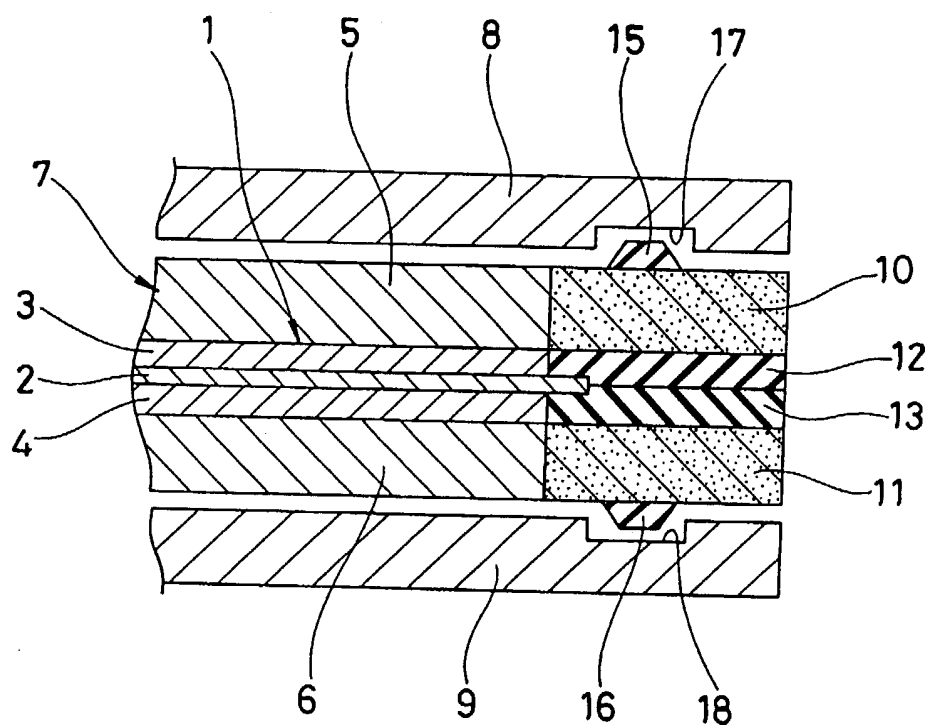
第9図





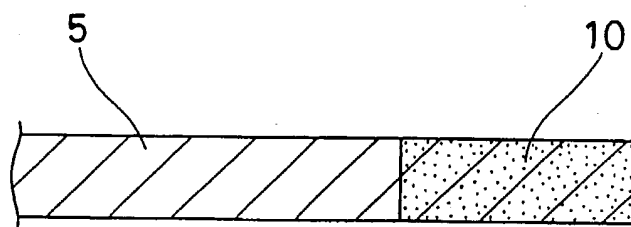
10/18

第10図

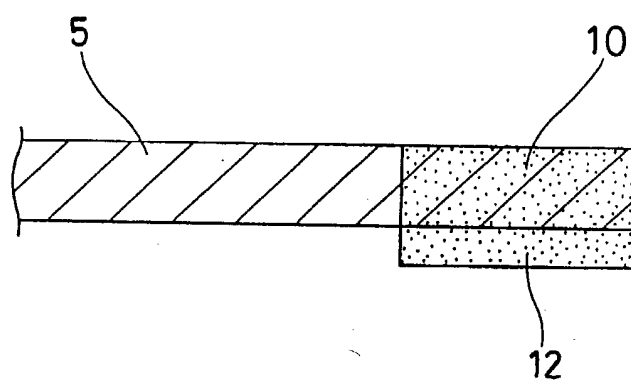


11/18

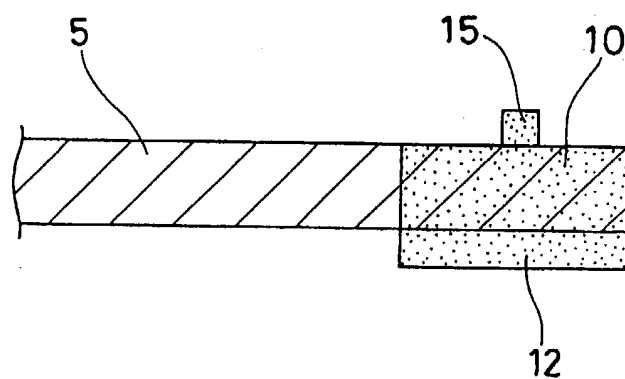
第11図



第12図

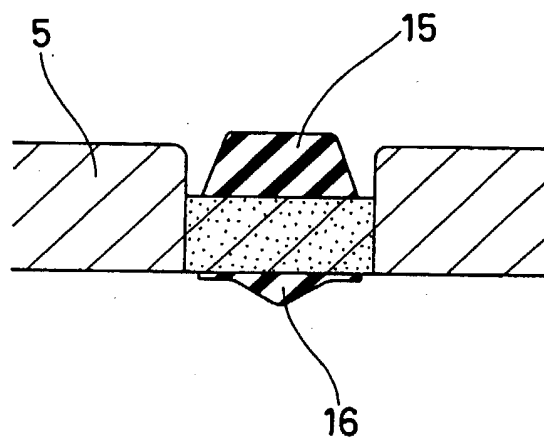


第13図

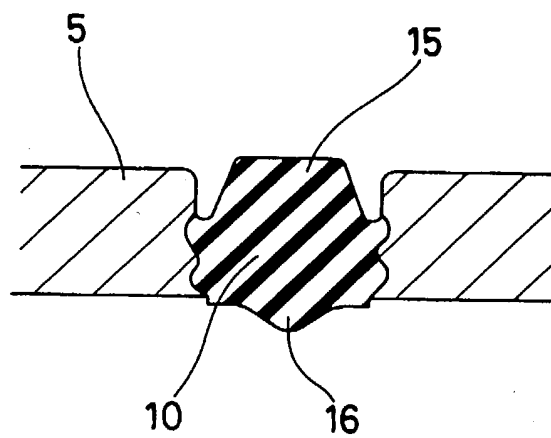


12/18

第14図 (A)

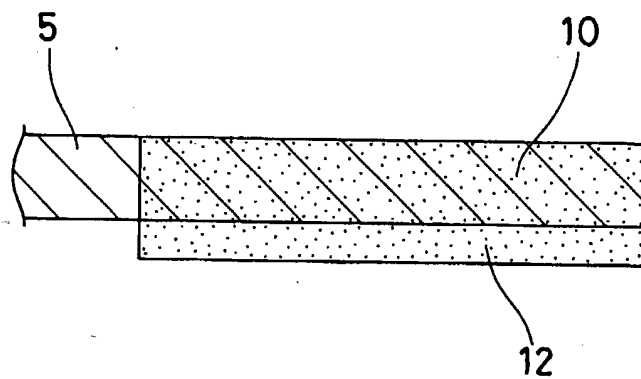


第14図 (B)

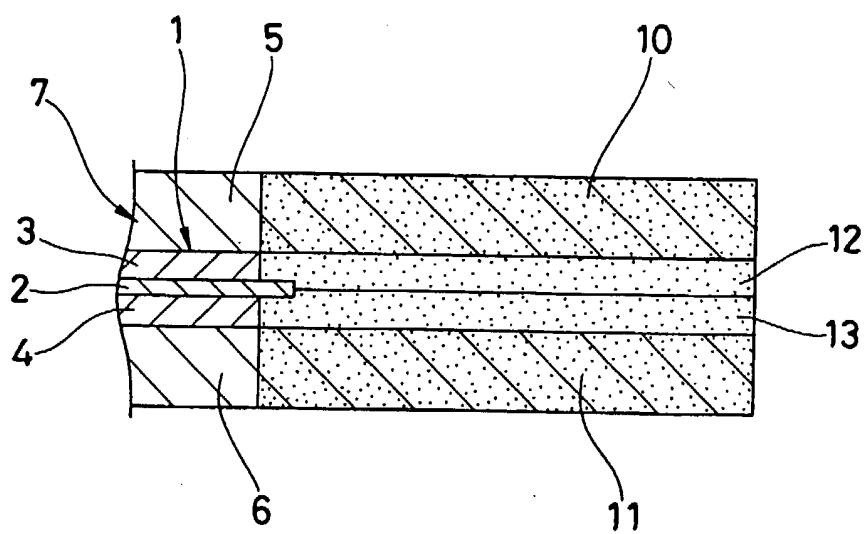


13/18

第15図

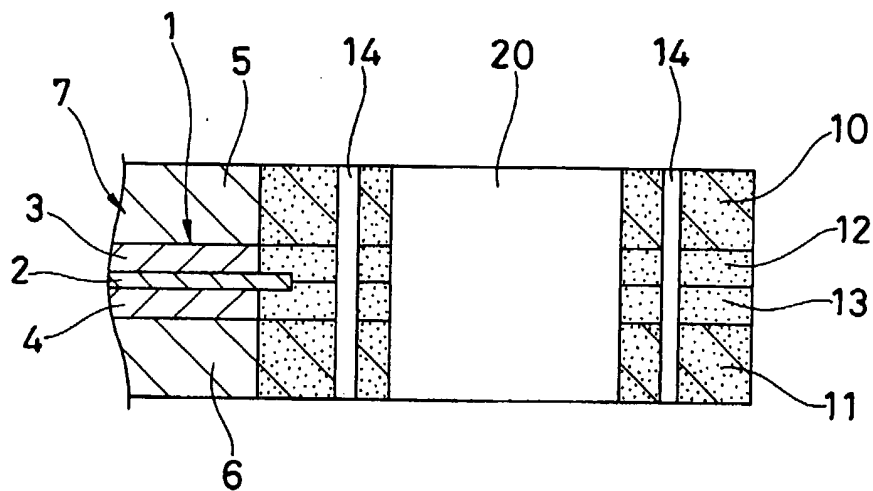


第16図

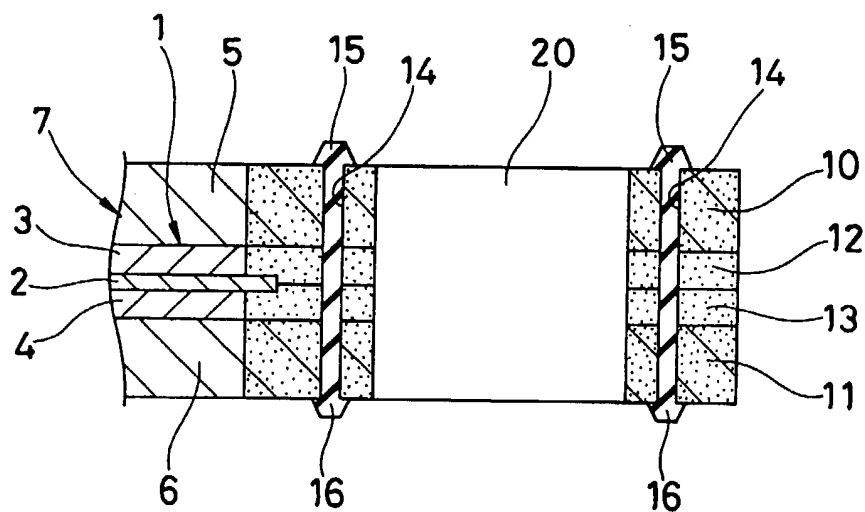


14/18

第17図

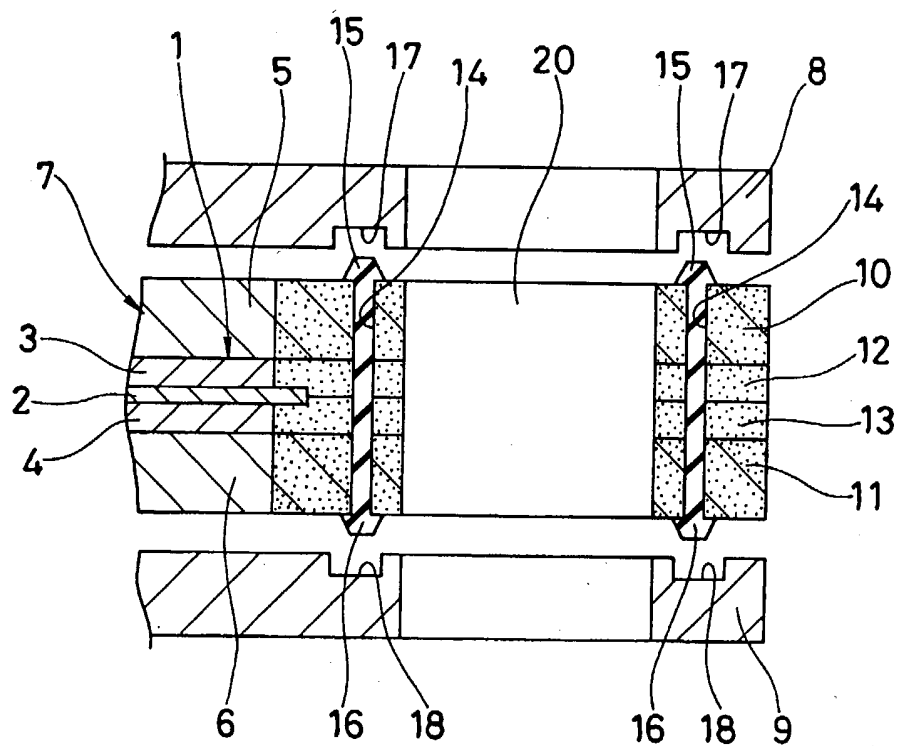


第18図



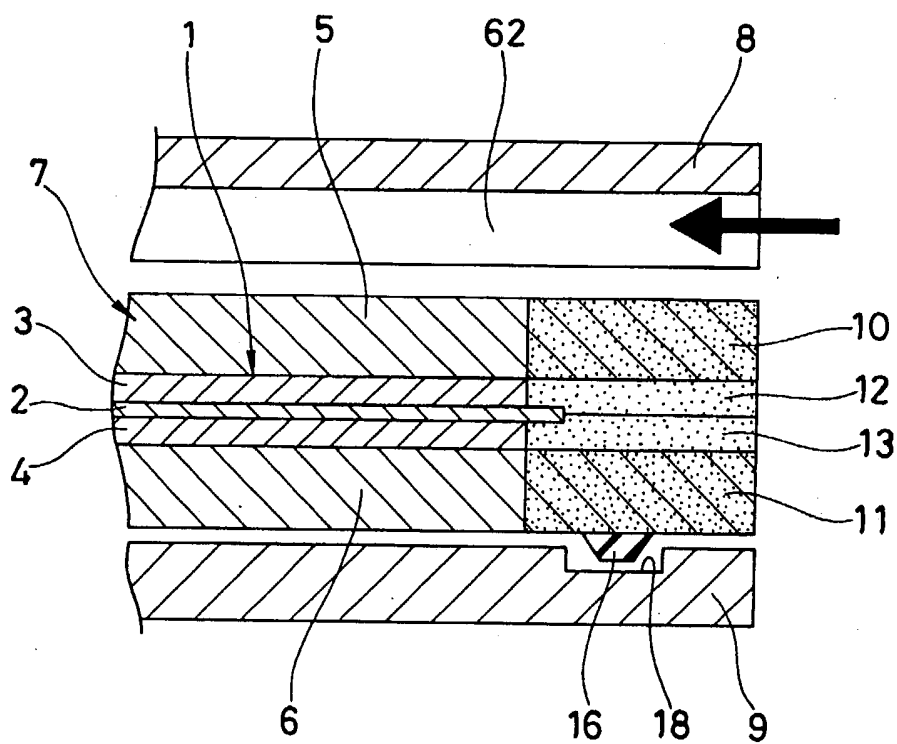
15/18

第19図



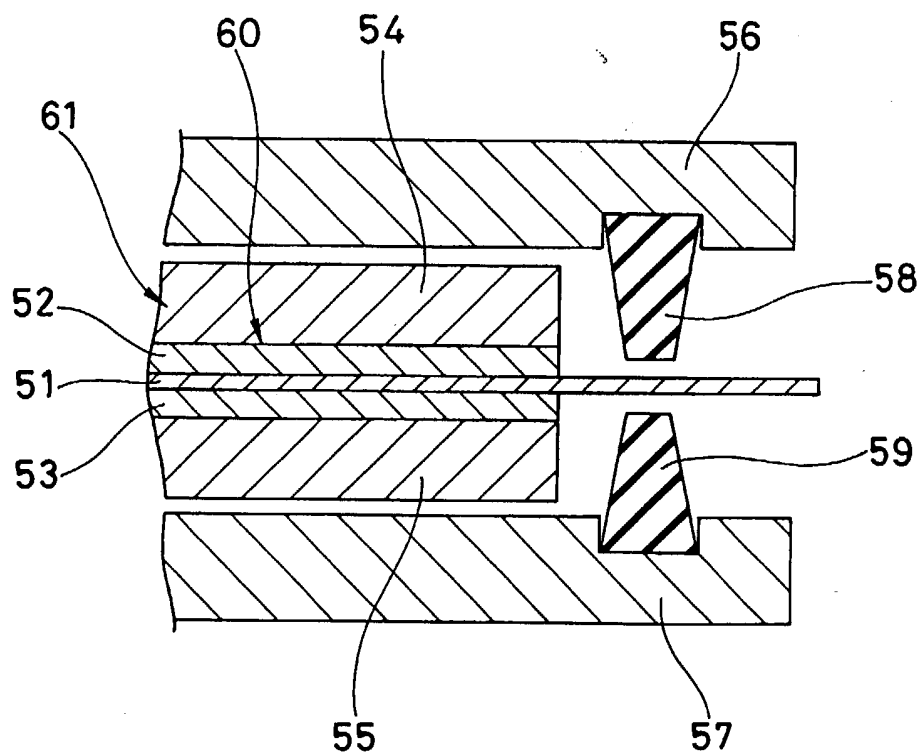
16/18

第20図



17/18

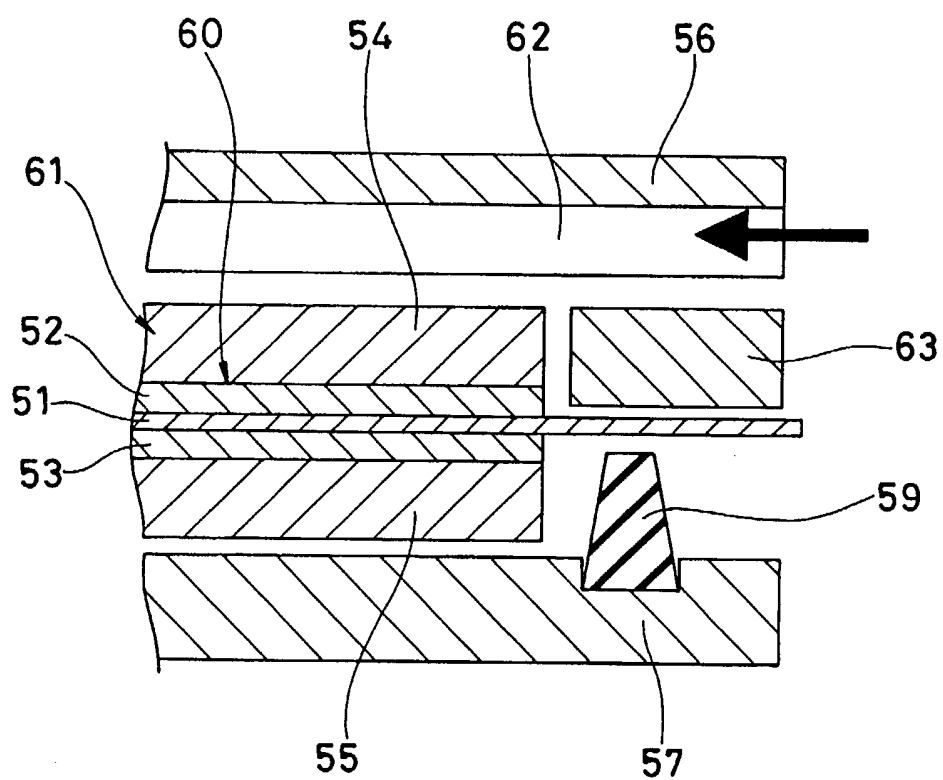
第21図





18/18

第22図



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/04038

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/04, 8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/00-24, H01M4/86-98

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2002

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2002 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 92/22096 A2 (Ballard Power Systems Inc.), 10 December, 1992 (10.12.92), Full text & AU 1886692 A & CA 2102695 A1 & EP 586461 A & JP 7-501417 A & US 5464700 A	1-17
A	WO 99/4446 A1 (Ballard Power Systems Inc.), 28 January, 1999 (28.01.99), Full text & AU 8329398 A & CA 2243355 A & CA 2243370 A & EP 1018177 A & US 6057054 A & US 6066409 A & US 6190793 B1 & US 6232008 B1 & US 2001/19792 A	1-17

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 27 June, 2002 (27.06.02)	Date of mailing of the international search report 09 July, 2002 (09.07.02)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/04038

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 7-220742 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 18 August, 1995 (18.08.95), Full text (Family: none)	1-17

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP02/04038

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M 8/04, 8/10

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M 8/00-24, H01M4/86-98

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2002年

日本国登録実用新案公報 1994-2002年

日本国実用新案登録公報 1996-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリ*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	WO 92/22096 A2 (BALLARD POWER SYSTEMS INC.) 1992.12.10 文献全体 &AU 1886692 A &CA 2102695 A1 &EP 586461 A &JP 7-501417 A &US 5464700 A	1-17
A	WO 99/4446 A1 (BALLARD POWER SYSTEMS INC.) 1999.01.28 文献全体 &AU 8329398 A &CA 2243355 A &CA 2243370 A &EP 1018177 A &US 6057054 A &US 6066409 A &US 6190793 B1 &US 6232008 B1 &US 2001/19792 A	1-17

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリ

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27.06.02

国際調査報告の発送日

09.07.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JJP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森井 裕美

4X

9737

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 7-220742 A (松下電器産業株式会社) 1995.08.18 文献全体 ファミリーなし	1-17